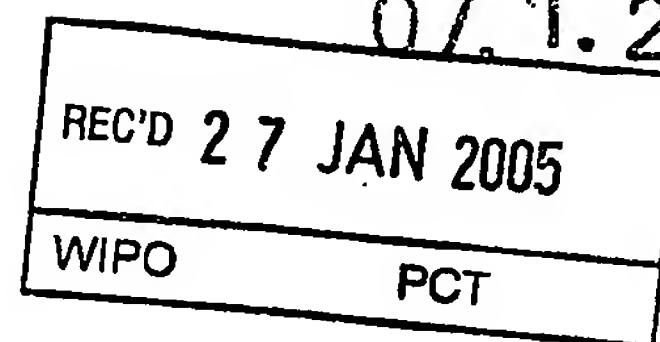


日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

07.1.2005



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2004年 1月 8日

出願番号
Application Number: 特願2004-003377
[ST. 10/C]: [JP 2004-003377]

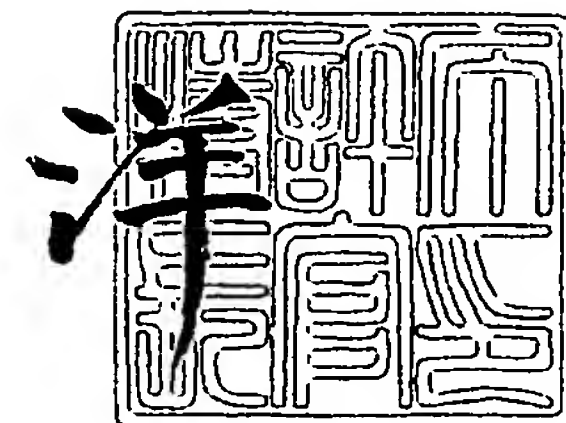
出願人
Applicant(s): 昭和電工株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月18日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願
【整理番号】 11H160004
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 C04B 20/00
【発明者】
 【住所又は居所】 富山県富山市西宮町3番1号 昭和タニウム株式会社内
 【氏名】 都築 宏
【発明者】
 【住所又は居所】 富山県富山市西宮町3番1号 昭和タニウム株式会社内
 【氏名】 小古井 久雄
【発明者】
 【住所又は居所】 千葉県千葉市緑区大野台1-1-1 昭和電工株式会社研究開発
 センター内
 【氏名】 田中 淳
【特許出願人】
 【識別番号】 000002004
 【住所又は居所】 東京都港区芝大門1-13-9
 【氏名又は名称】 昭和電工株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100118740
 【住所又は居所】 東京都港区芝大門1-13-9
 【氏名又は名称】 柿沼 伸司
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 010227
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 0102656

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

多峰性の頻度粒度分布を有し、少なくとも $0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ と $2 \sim 63 \mu\text{m}$ の粒度域に極大径を含有する粉体である無機質粉体。

【請求項 2】

最大粒子径が $63 \mu\text{m}$ 以下で、平均粒子径が $4 \sim 30 \mu\text{m}$ の範囲にあり、最頻径が $2 \sim 35 \mu\text{m}$ の範囲にある請求項 1 に記載の無機質粉体。

【請求項 3】

粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の割合が $0 \sim 20$ 質量%で、粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の最頻径が $0.25 \sim 1.5 \mu\text{m}$ の範囲にある請求項 1 または請求項 2 に記載の無機質粉体。

【請求項 4】

粒子径が $8 \mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が $44 \sim 90$ 質量%である請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 5】

粒度域 $2 \sim 8 \mu\text{m}$ の粒子の割合が $32 \sim 45$ 質量%である請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 6】

球形度が $0.68 \sim 0.95$ で、球状化率が $0.63 \sim 0.95$ である請求項 1 乃至 5 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 7】

粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の球形度が $0.5 \sim 0.95$ 、球状化率が $0 \sim 0.9$ である請求項 1 乃至 6 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 8】

粒子径が $8 \mu\text{m}$ 以上の粒子の球形度が $0.7 \sim 0.9$ 、球状化率が $0.7 \sim 0.9$ であることを特徴とする請求項 1 乃至 7 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 9】

無機質粉体の熱伝導性が、単結晶時において $30 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上である請求項 1 乃至 8 に記載の無機質粉体。

【請求項 10】

無機質粉体の α アルミナ結晶相分率が、 $30 \sim 70$ 質量%の範囲にある請求項 1 乃至 9 に記載の無機質粉体。

【請求項 11】

$2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の α アルミナ結晶相分率が、 $90 \sim 99$ 質量%の範囲にある請求項 1 乃至 10 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 12】

$8 \mu\text{m}$ 以上の粒子の α アルミナ結晶相分率が、 $30 \sim 60$ 質量%の範囲にある請求項 1 乃至 11 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 13】

シラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤などの表面処理剤によって表面疎水化処理されている請求項 1 乃至 12 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。

【請求項 14】

請求項 1 乃至 13 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体が充填されている樹脂組成物。

【請求項 15】

無機質粉体が $50 \sim 90$ 質量%充填されている請求項 14 に記載の樹脂組成物。

【請求項 16】

樹脂組成物が、膜厚 $40 \mu\text{m}$ 以上 $90 \mu\text{m}$ 以下の薄膜状絶縁性樹脂組成物とした場合に、JIS C 2110 に規定された絶縁破壊電圧試験によって測定される絶縁破壊強度が 39 kV/mm 以上である請求項 14 または請求項 15 に記載の樹脂組成物。

【請求項 17】

請求項 14 乃至 16 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した自動車搭載用回路基板

。

【請求項 18】

請求項 14 乃至 16 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器搭載用回路基板。

【請求項 19】

請求項 14 乃至 16 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器内部設置型の放熱用部材。

【請求項 20】

請求項 14 乃至 16 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子部品用の放熱部材。

【請求項 21】

放熱部材が、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材である請求項 20 に記載の電子部品用の放熱部材。

【請求項 22】

請求項 14 乃至 16 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物が、絶縁接着層等を兼ねた放熱用部材として使用されている金属ベース回路基板、又はメタルコア型回路基板、及びそれらの構造体。

【請求項 23】

請求項 20 または請求項 21 に記載の放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 無機質粉体、およびこれを充填した樹脂組成物とその用途

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気絶縁性と放熱性能が要求される電子部品の回路基板等の用途において、放熱部材として有用な熱伝導性を有する樹脂組成物とその用途、及び樹脂組成物に熱伝導性フィラーとして充填される高熱伝導性を有する無機質粉体に関するものである。

【背景技術】

【0002】

近年、半導体素子等の電子部品を搭載した回路基板は、家電製品や自動車の電装用等様々な分野での電子制御装置に用いられているが、装置小型化への急速な進展に伴い回路基板への高集積化と高機能化要求が益々高まっている。その結果、回路上等で局所的に発生する発熱量は増大傾向にある。発熱、蓄熱は回路等の耐久性に対し悪影響を及ぼすため、回路基板には電気絶縁性等の電氣的信頼性に加え、より高い放熱性能が要求され、現在、回路基板本体や封止材、及び絶縁接着層等の部材に至るまで、放熱性能の改良と伝熱・放熱方法の検討がなされている。

【0003】

放熱方法は、熱伝導性が高い金属製フィンや放熱板と、回路基板等を接して組み付けることで熱を伝達、放散させる方法が一般的である。しかし、両者の接点部で通電、短絡が発生すると回路が破壊されるため、両者間には電気絶縁性が高い公知の有機重合体組成物等からなる樹脂組成物層を挟み絶縁することが一般的である。しかし、有機重合体組成物のみでは一般的に熱伝導率が低く、放熱部材としての性能は低い。

【0004】

有機重合体組成物等からなる樹脂組成物に熱伝導性を付加する方法としては、従来から高熱伝導性を有する無機質粉体を熱伝導性フィラーとして充填する技術が知られている。尚、無機質粉体は難燃性、電気絶縁性等の機能を付加するフィラーにもなる。ここで、特に球状の無機質粉体は充填性及び流動性の点で優れることから、回路基板の放熱部材、半導体封止材の充填材料として既に多く実用されている。例えば、熱伝導率が高い球状酸化アルミニウム粉体は放熱フィラーとして使用され、球状シリカ粉体はその高い純度から半導体封止剤フィラーとして使用されている。

【0005】

球状無機質粉体を得る方法の例としては、原料となる無機質粉体、又はそのスラリーを高温火炎中に導入して熔融状態にし、表面張力により球状化する技術が知られている（例えば、特許文献1）。或いは、原料として金属が用いられることもあり、この場合には金属の高温酸化と熔融球状化が同時並行に起きることになる（例えば、特許文献2）。

【0006】

球状状態が良好な、いわゆる高球形度の球状無機質粉体は、高充填性や、流動性の指標である樹脂コンパウンドに充填した時の粘度（以降、樹脂コンパウンド粘度と称する）が低いため、空隙等の樹脂欠陥発生の可能性が少ない。この点が強みとなり、高価であっても樹脂コンパウンドの放熱性能向上が期待できるフィラーとして重用される。ところが、比較的安価な、低球形度或いは破碎粉のように角がある無機質粉体は、樹脂コンパウンド粘度が比較的高くなり、特にコンパウンドが熱硬化、高粘度化する際の流動不良が著しく樹脂欠陥が発生し易い。樹脂欠陥が多く存在すると電氣的信頼性、耐電圧特性の指標となる絶縁破壊電圧に対する強度（以降、絶縁破壊強度と称する）が低下する傾向があった。

【0007】

又、無機質粉体は一般的に表面が親水性であるため、コンパウンドとなるエポキシ樹脂に代表される有機重合体組成物やシリコン重合体組成物との親和性が低く、特に球状無機質粉体は表面が平滑であるため結合性、接着性が弱いため、界面破壊が生じ易く絶縁破壊強度は低下し易い。このような場合においても、シラン系カップリング剤等で粉体を表面処理し疎水化することで、樹脂組成物との接着性を向上させる技術が一般的に知られてい

る。(例えば、特許文献3、特許文献4、非特許文献1)

【0008】

回路基板の放熱部材に用いられる樹脂組成物には、有機重合組成物等が本来有する柔軟性、耐電圧特性を維持しつつ、高放熱性能を有することが求められる。高放熱性能を得るために熱伝導性の高い無機質粉体を高充填すると、界面破壊や樹脂欠陥の発生による耐電圧特性の低下、柔軟性低下につながることから、従来技術では流動性が良く(即ち樹脂コンパウンド粘度が低く)、高充填性を有する、高価な高球形度の球状無機質粉体を選択され重用されている。更に、分級・混合処理による特殊な粒度分布や粒子性状への制御、表面処理等の追加加工による接着性等の改善を実施した上で使用する技術が知られている(例えば、特許文献5、特許文献6)。

【0009】

即ち、言い換えるならば従来技術では、比較的低コストで入手、製造できる破碎粉や低球形度の粉体等、流動性が比較的良好でない(即ち樹脂コンパウンド粘度が高い)無機質粉体は高充填が難しく、更に樹脂欠陥等の発生により耐電圧特性が著しく低下するため使用することができず、その結果、放熱性能と高耐電圧特性を有する樹脂組成物を得ることはできなかった。

【特許文献1】特開2001-19425号公報

【特許文献2】特開平5-193908号公報

【特許文献3】特開平5-335446号公報

【特許文献4】特開2001-240771号公報

【特許文献5】特開2001-139725号公報

【特許文献6】特開2003-137627号公報

【非特許文献1】日本ユニカー株式会社製NUCシランカップリング剤カタログ

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明では、樹脂組成物中に放熱性能を向上させ得るほどに高充填でき、なお且つ、高耐電圧特性を有する薄膜状絶縁性樹脂組成物(以降、薄膜樹脂シートと称する)の成膜を可能にする熱伝導性無機質粉体を提供し、電気絶縁性と放熱性能が要求される回路基板等の放熱部材として用いることが可能な樹脂組成物を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明は、上述のような状況を鑑みてなされたものであり、ある特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは予め表面疎水化処理が施された、熱伝導性無機質粉体を用いることにより、樹脂コンパウンド粘度が高くなるような低球形度の粉体であるにもかかわらず樹脂組成物に高充填でき、高熱伝導性を発現し、且つ、薄膜樹脂シート成膜時において高い絶縁破壊強度が得られることを見出し本発明に至った。

【0012】

即ち、本発明は、以下の各実施態様からなる。

(1) 多峰性の頻度粒度分布を有し、少なくとも0.2~2 μ mと2~63 μ mの粒度域に極大径を含有する粉体である無機質粉体。

(2) 最大粒子径が63 μ m以下で、平均粒子径が4~30 μ mの範囲にあり、最頻径が2~35 μ mの範囲にある(1)に記載の無機質粉体。

(3) 粒子径が2 μ m未満の粒子の割合が0~20質量%で、粒子径が2 μ m未満の粒子の最頻径が0.25~1.5 μ mの範囲にある(1)または(2)に記載の無機質粉体。

(4) 粒子径が8 μ m以上の粒子の割合が44~90質量%である(1)乃至(3)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(5) 粒度域2~8 μ mの粒子の割合が32~45質量%である(1)乃至(4)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(6) 球形度が0.68~0.95で、球状化率が0.63~0.95である(1)乃至

- (5) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。
- (7) 粒子径が $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の球形度が $0.5 \sim 0.95$ 、球状化率が $0 \sim 0.9$ である (1) 乃至 (6) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。
- (8) 粒子径が $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の球形度が $0.7 \sim 0.9$ 、球状化率が $0.7 \sim 0.9$ であることを特徴とする (1) 乃至 (7) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。
- (9) 無機質粉体の熱伝導性が、単結晶時において $30\text{W/m}\cdot\text{K}$ 以上である (1) 乃至 (8) に記載の無機質粉体。
- (10) 無機質粉体の α アルミナ結晶相分率が、 $30 \sim 70$ 質量%の範囲にある (1) 乃至 (9) に記載の無機質粉体。
- (11) $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の α アルミナ結晶相分率が、 $90 \sim 99$ 質量%の範囲にある (1) 乃至 (10) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。
- (12) $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の α アルミナ結晶相分率が、 $30 \sim 60$ 質量%の範囲にある (1) 乃至 (11) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。
- (13) シラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤などの表面処理剤によって表面疎水化処理されている (1) 乃至 (12) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体。
- (14) (1) 乃至 (13) のいずれか 1 項に記載の無機質粉体が充填されている樹脂組成物。
- (15) 無機質粉体が $50 \sim 90$ 質量%充填されている (14) に記載の樹脂組成物。
- (16) 樹脂組成物が、膜厚 $40\mu\text{m}$ 以上 $90\mu\text{m}$ 以下の薄膜状絶縁性樹脂組成物とした場合に、JIS C2110 に規定された絶縁破壊電圧試験によって測定される絶縁破壊強度が 39kV/mm 以上である (14) または (15) に記載の樹脂組成物。
- (17) (14) 乃至 (16) のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した自動車搭載用回路基板。
- (18) (14) 乃至 (16) のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器搭載用回路基板。
- (19) (14) 乃至 (16) のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器内部設置型の放熱用部材。
- (20) (14) 乃至 (16) のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子部品用の放熱部材。
- (21) 放熱部材が、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材である (20) に記載の電子部品用の放熱部材。
- (22) (14) 乃至 (16) のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物が、絶縁接着層等を兼ねた放熱用部材として使用されている金属ベース回路基板、又はメタルコア型回路基板、及びそれらの構造体。
- (23) (20) または (21) に記載の放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体。

【発明の効果】**【0013】**

本発明の無機質粉体は、球形度・球状化率が低い場合においても、樹脂組成物に高密度で充填可能であるため、樹脂組成物の放熱性能・絶縁破壊強度を向上させることが可能である。

さらに、本発明の無機質粉体を使用した樹脂薄膜シートは、高耐電圧特性が得られるため、熱伝導性、放熱特性、耐電圧特性に優れた樹脂組成物、樹脂薄膜シート、及びそれらを放熱部材として用いた回路基板及び構造体を提供することが可能になる。

すなわち本発明の無機質粉体は、特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは、表面疎水化処理を施した粉体である効果により、球形度が低く樹脂コンパウンド粘度が高くなる粉体であっても樹脂組成物に高充填できるという長所を有し、この無機質粉体を成分の一つとして用いることで、熱伝導性に優れ、且つ、厚さ $40 \sim 90\mu\text{m}$ の薄膜樹脂シート成膜時において、優れた耐電圧特性を示す樹脂組成物が得られる。

従って、本発明の樹脂組成物を使用すれば、放熱特性および耐電圧特性に優れた自動車搭載用回路基板、電子機器搭載用回路基板、電子機器内部の放熱用部材、電子部品用の放熱部材が得られる。この場合、当該電子部品用の放熱部材は、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材であってもよい。

また、本発明の樹脂組成物を使用すれば、絶縁接着層等を兼ねた放熱用部材として、金属ベース回路基板、メタルコア型回路基板、及びそれらの構造体などに使用した場合においても優れた機能性を発揮する。

さらに、これらの放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体を形成することも可能であり、様々な電子機器類の高性能化に貢献可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の無機質粉体は、特定の粒度分布を有することの効果により、樹脂組成物中への高充填が可能となる。

【0015】

本発明の無機質粉体は、最大粒子径が $63\mu\text{m}$ 以下、且つ、平均粒子径が $4\sim30\mu\text{m}$ 、より好ましくは $4\sim16\mu\text{m}$ の範囲であり、最頻径が $2\sim35\mu\text{m}$ 、より好ましくは $7\sim20\mu\text{m}$ の範囲にあり、頻度粒度分布において多峰性（2以上の極大値あるいはピークを有する）の粉体である。すなわち、頻度粒度分布において少なくとも $0.2\sim2\mu\text{m}$ と $2\sim63\mu\text{m}$ の粒度域にそれぞれ極大径を持つ多峰性を有し、球形度は $0.68\sim0.95$ で、より好ましくは $0.68\sim0.80$ であり、且つ、球状化率は $0.63\sim0.95$ で、より好ましくは $0.63\sim0.77$ である。

多峰性とすることで、粗大粒子の空隙に微粒子がより多く滑り込み、最密充填が加速されると考えられ、さらにこの様な粒度域に極大値を有することで、最密充填が促進される。

【0016】

$0.2\sim2\mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子成分としては、無機質粉体を100質量%とした時、粒子径が $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の割合が $0\sim20$ 質量%、好ましくは $0\sim11$ 質量%で、最頻径が $0.25\sim1.5\mu\text{m}$ の範囲にあり、球形度は $0.5\sim0.95$ 、より好ましくは $0.8\sim0.85$ であり、球状化率は $0\sim0.9$ 、より好ましくは $0\sim0.5$ である。

【0017】

$2\sim63\mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子成分の特徴としては、粒子径が $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が $44\sim90$ 質量%、より好ましくは $48\sim86$ 質量%であり、球形度は $0.7\sim0.9$ 、より好ましくは $0.7\sim0.8$ 、更に好ましくは $0.7\sim0.78$ であり、球状化率は $0.7\sim0.9$ 、より好ましくは $0.7\sim0.75$ である。

【0018】

更に $2\sim8\mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子の割合は $0\sim20$ 質量%、より好ましくは $5\sim15$ 質量%、または $32\sim45$ 質量%、より好ましくは $34\sim45$ 質量%である。

無機質粉体をこのような粒度分布となる様に混合等することにより、粉体の球形度が低くても、充填度の高い無機質粉体とすることが可能である。

【0019】

無機質粉体の例としては、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、結晶性シリカ、マグネシア、窒化ホウ素、窒化ケイ素、ベリリア、炭化ケイ素、炭化ホウ素、炭化チタン、ダイヤモンド等が使用可能であるが、好ましくは、熱伝導性（熱伝導率）及び絶縁性（体積固有抵抗値）を両立する無機質粉体を使用する。特に好ましくは、単結晶の場合における熱伝導率が $30\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ 以上で、体積固有抵抗値 $1\times10^{14}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上である無機質粉体を使用する。

例えば、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、マグネシア、窒化ホウ素、ベリリア等

が特に好ましい無機質粉体として採用可能である。

【0020】

なお、耐湿性や化学的安定性、使用安全性を考慮すると、本発明の無機質粉体としては、酸化アルミニウム、窒化アルミニウムが最も好ましいが、経済性を考慮した場合には酸化アルミニウムが好ましい。無機質粉体は、単体でも混合体でも使用が可能である。

【0021】

酸化アルミニウム粉体としては、バイヤー法水酸化アルミニウムを焼結、又は電融して得られる酸化アルミニウム粉体を原料として火炎熔融法の球状化工程を経由した球状酸化アルミニウム粉体や、バイヤー法水酸化アルミニウムから製造された低ソーダ微粒酸化アルミニウム粉体、アンモニア明礬熱分解法やアルミニウムアルコキシド加水分解法、アルミニウム水中放電法、或いは他の方法により製造された高純度微粒酸化アルミニウム粉体が好ましいが、特にこれらには限定されない。

窒化アルミニウム粉体としては、直接窒化法や還元窒化法等の方法により製造された窒化アルミニウム粉体が好ましいが、特にこれらには限定されない。

なお、これらの酸化アルミニウムおよび窒化アルミニウムは、単体でも混合体でも使用可能である。さらに、様々な製造方法で得られた酸化アルミニウムおよび窒化アルミニウムを複数組み合わせることも可能である。

【0022】

本発明における無機質粉体は、X線回折分析によって測定される α アルミナ結晶相分率が30～70質量%、より好ましくは30～55質量%の範囲にある粉体であることが好ましい。

【0023】

更に本発明における無機質粉体は、粒度域2 μ m未満の粉体の α アルミナ結晶相分率が90～99質量%、好ましくは95～99質量%の範囲であり、且つ、粒度域8 μ m以上の粉体の α アルミナ結晶相分率が30～60質量%、好ましくは35～50質量%の範囲である粉体であることが好ましい。

α アルミナ結晶化率をこの様な範囲に調整することで、熱伝導度の高い無機質粉体とすることが可能となる。

【0024】

本発明の無機質粉体の粒度分布は公知の粒度分布測定装置で求めることができる。例えば、レーザー回折/散乱方式の粒度測定装置を用いることが好ましく、粒度分布測定装置としては、例えばマイクロトラックHRA（日機装（株）社製）やSALD-2000J（株）島津製作所製）で測定することができる。尚、水の屈折率は1.33を用い、例えば無機質粉体が酸化アルミニウム粉体である場合には屈折率は1.8を用いる。

【0025】

本発明でいう最大粒子径とは無機質粉体の累積粒度分布において累積値100%粒子径のことであり、平均粒子径とはメジアン径のことであり、無機質粉体の累積粒度分布において累積値50%粒子径のことである。又、極大径とは無機質粉体の頻度粒度分布において極大値を示す粒子径のことであり、最頻径とは極大径のうち最も高い頻度値を示す粒子径のことである。

【0026】

本発明でいう球形度とは平均球形度を示しており、次の方法にて求めることができる。実体顕微鏡や走査型電子顕微鏡等にて撮影した粒子像を画像解析装置などに取り込み、写真から任意の粒子の投影面積（a）と輪郭周長L（a）を計測し、L（a）と同一の輪郭周長を持つ真円の面積を（b）とした場合、

$$(b) = \pi \times (L(a) / 2\pi)^2$$

と表すことができる。従って、球形度は以下の式で算出することができる。

$$\text{球形度} = (a) / (b) = (a) \times 4\pi / (L(a))^2$$

このようにして、ある一定個数の粒子の球形度を求め、平均値を平均球形度とする。この際、200個以上の粒子を使用して算出することが好ましい。

【0027】

尚、上記以外の球形度の測定方法としては、粒子像分析装置、例えば「FPIA-2100」（シスメックス(株) 社製）などにて定量的に自動計測された個々の粒子の円形度から、以下の式により換算して球形度を求めることもできる。

$$\text{球形度} = (\text{円形度})^2$$

【0028】

本発明でいう球状化率とは、いわゆる球形度分布における球形度 1.0 の個数頻度割合である。これは前述の粒子像分析装置などで定量的に自動計測された粒子の円形度の個数頻度積算から求めることができる。

【0029】

尚、上記以外に球状化率を求める方法として、走査型電子顕微鏡にて粉体粒子の大きさに合わせた所定倍率（150～1000 倍の任意の倍率）で撮影した 1 視野中において、5 μm 以上の粒子全個数と未球状粒子個数を計数し、以下の式で算出することもできる。

$$\text{球状化率} = (\text{全個数} - \text{未球状粒子個数}) / \text{全個数}$$

尚、未球状粒子の計数方法については、予め用意した判断標本を用い比較する目視法や公知の画像解析装置を用いた計数法等、何れの方法を用いても良い。

【0030】

無機質粉体における α アルミナ結晶相分率の測定は特に限定されず、公知の粉末 X 線回折装置で測定することができ、CuK α 線によりスリット 0.3 mm、スキャンスピード 1 度/分、スキャン範囲 $2\theta = 65 \sim 70$ 度の条件で X 線回折分析を実施し、得られた $2\theta = 68.2$ 度のピーク（ α アルミナ）高さを A、 $2\theta = 67.3$ 度のピーク（中間アルミナ）高さを B、バックグラウンドとして $2\theta = 69.5$ 度のベースラインの値を C として、

$$\alpha \text{ アルミナ結晶相分率} =$$

$$(A - C) / ((A - C) + (B - C)) \times 100$$

で求めることができる。

【0031】

本発明で用いる無機質粉体はシラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤による表面疎水化処理を実施した粉体であることが好ましく、表面疎水化処理の実施方法としては特に限定されないが、せん断力のある攪拌ミキサー等を用いた乾式法、水系又は有機溶剤系等で分散処理する湿式スラリー法、流体ノズルを用いたスプレー法といった公知の方法が挙げられる。

【0032】

尚、これらの表面疎水化処理実施に際しては、攪拌力を伴う方法の場合には粉体の形状破壊等が生じないように注意を払い、攪拌時間等の条件については表面疎水化処理を施す無機質粉体の粒度、シラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤の種類、及び粉体の目標特性に応じて適宜決定すれば良い。

【0033】

表面疎水化処理に使用するシラン系カップリング剤については特に限定されないが、例えば β -（3, 4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のエポキシ系シラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-（ β -アミノエチル）- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノ系シラン、ウレイドプロピルトリエトキシシランが好ましく、これらは単独、或いは複数で用いることができる。絶縁層等を構成する樹脂組成物と無機質粉体の接着性、分散性を考慮して選定すれば良い。

【0034】

チタネート系カップリング剤についても同様に特に限定されないが、絶縁層等を構成する樹脂組成物と無機質粉体の接着性、分散性を考慮して選定すれば良い。

【0035】

本発明の樹脂化合物のマトリックスとして用いられる有機重合体組成物の具体例としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、シリコン樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレンなどのポリオレフィン、メラミン樹脂、ユリア樹脂、フェノール樹脂、ポリエチレンテレフタレート、不飽和ポリエステルなどのポリエステル、ナイロン6、ナイロン66、アラミドなどのポリアミド、ポリブタジエン、ポリエステル、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレンオキサイド、ポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、ビニルアセタール樹脂、ポリアセテート、ABS樹脂、酢酸ビニル樹脂、セルロースおよびレーヨンその他のセルロース誘導体、ポリウレタン、ポリカーボネート、尿素樹脂、フッ素樹脂、ポリフッ化ビニリデン、セルロイド、キチン、澱粉シート、アクリル樹脂、アルキド樹脂等といった公知の樹脂組成物、及びこれらの混合物が好ましいが、特にこれらに限定されない。尚、これらは単独、或いは複数で用いることも可能である。

【0036】

この中で特に、金属板や金属箔と接着力が比較的強く、無機質粉体との親和性が比較的高いとされるエポキシ樹脂やポリイミド樹脂を用いることがさらに好ましい。また、前述樹脂組成物には、必要に応じて硬化促進剤等を用いることもできる。

【0037】

硬化促進剤については、使用する樹脂組成物と反応して硬化させるものであれば特に限定されないが、例えばエポキシ樹脂と反応して硬化させる公知の促進剤としては、フェノール、クレゾール、イミダゾール、キシレノール、レゾルシノール、クロロフェノール、トープチルフェノール、ノニルフェノール、イソプロピルフェノール、ビスフェノールAやビスフェノールS等のビスフェノール化合物、無水マレイン酸等の酸無水物等が好ましく、使用する樹脂組成物との反応性を考慮して選定すれば良い。

【0038】

本発明の樹脂化合物の成膜方法は特に制限されるものではないが、ドクターブレード法や、樹脂コンパウンド粘度によっては押出し法、プレス法、カレンダーロール法等を用いることが好ましい。

【0039】

本発明の無機質粉体の流動性を示す指標である樹脂コンパウンド粘度の評価、及び、粉体を充填し薄膜シートに成形した樹脂組成物の耐電圧特性評価は、実施例に記載する評価方法により行うことができる。

【0040】

本発明の無機質粉体は、特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは、表面疎水化処理を施した粉体である効果により、球形度が低く樹脂コンパウンド粘度が高くなる粉体であっても樹脂組成物に高充填できるという長所を有し、この無機質粉体を成分の一つとして用いることで、熱伝導性に優れ、且つ、厚さ40～90 μ mの薄膜樹脂シート成膜時において、優れた耐電圧特性を示す樹脂組成物が得られる。

さらに、本発明の無機粉体を使用した樹脂組成物を使用すれば、公知の方法により自動車搭載用回路基板、電子機器搭載用回路基板、電子機器内部の放熱用部材、電子部品用の放熱部材とすることが可能となる。さらに、当該電子部品用の放熱部材が、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材であってもよく、金属ベース回路基板、又はメタルコア型回路基板、及びそれらの構造体とすることも可能である（例えば、電子技術1985年12月臨時増刊号P.39～50、サーキットテクノロジーP.96-103、Vol.5、No.2（1990））。

また、公知の方法を採用すれば、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体とすることも可能である。

【実施例】

【0041】

以下、実施例、比較例によって本発明について具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0042】

(実施例 1 ~ 5)

シランカップリング剤としてγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン (A-187; 日本ユニカー社製) を用いて、予め表面疎水化処理を施した後、粒度分布条件を表 1 の如く調整した酸化アルミニウム粉体 A、B、C、D を準備した。

所定条件にて樹脂組成物に混練充填後、ドクターブレード法により、乾燥硬化後の膜厚が約 60 μm 以下になるように成膜した。

所定の乾燥条件にて乾燥硬化した薄膜樹脂シートについて、各々の絶縁破壊強度を測定した。絶縁破壊強度は J I S

C 2 1 1 0 に規定された絶縁破壊電圧試験方法に基づき測定した。表 1 に記載の酸化アルミニウム粉体について樹脂コンパウンド粘度評価としてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表 1 に示した結果の通り、球形度が 0.81 未満の低球形度粉体で、エポキシ樹脂粘度が 5000 P 以上になるほど粘性が高くなったが、膜厚 44 ~ 53 μm において絶縁破壊強度 39 ~ 78 kV/mm を得ることができた。

【0043】

尚、薄膜樹脂シート作成における粉体と樹脂組成物の混練・充填条件、成膜・乾燥条件、シート耐電圧測定方法、及びエポキシ樹脂粘度測定方法を以下に示す。

【0044】

(1) 粉体と樹脂組成物の混練・充填条件

粉体 : 25 g

樹脂組成物: エポキシ樹脂化合物 10 g

硬化剤 : イミダゾール 0.1 g

上記混合物を公転自転混和方式脱泡混練器 ((株) シンキー社製 AR-250) を用いて、混練時間 5 分、脱泡時間 1 分の条件で混練する。

【0045】

(2) 成膜・乾燥条件

前記混練スラリーを自動フィルム塗布器 ((有) セプロ社製) とブレードエッジ (75 μm) を用いて、ドクタープレート法にて成膜後、直ちに定温恒温乾燥器にて 40 ~ 50 °C で 30 以上乾燥後、120 °C で 15 分、180 °C で 30 分、の 3 段階に分けて乾燥する。

【0046】

(3) 絶縁破壊強度測定方法

乾燥して得た薄膜樹脂シートを、耐電圧試験器 (菊水電子工業 (株) 製 TOS-8870A 型) を用い、印加電圧 AC 5 kV で、J I S C 2 1 1 0 に記載の絶縁破壊電圧試験方法に準拠した方法にて測定した。

【0047】

(4) エポキシ樹脂粘度測定方法

粉体 250 質量部、エポキシ樹脂 (旭化成 (株) 社製エポキシ樹脂 AER-250) 100 質量部を混練器にて混練し、恒温水槽にて 25 °C に調整した後、BH 型粘度計にて粘度を測定した。

【0048】

(比較例 1 ~ 4)

表 2 に記載の酸化アルミニウム粉体 E、F、G、H を、実施例と同様の手順、条件にて樹脂組成物に充填後、薄膜樹脂シートを成膜して絶縁破壊強度を測定すると共に、粉体各々についてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表 2 に示した結果の通り、何れも膜厚 47 ~ 50 μm で絶縁破壊強度 28 ~ 32 kV/mm であった。

【0049】

(参考例 1)

酸化アルミニウム粉体が非常に高い球形度を有する場合の例として、表 3 に記載の酸化アルミニウム粉体 I (アドマテックス社製、球状酸化アルミニウム「アドマファイン AO

「502」を20質量%、「アドマファインAO-509」を80質量%の割合で混合した粉体)を準備した。

実施例と同様の方法で薄膜樹脂シートを成膜した後、絶縁破壊強度を測定し、粉体についてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表3に示した通り、市販されている高球形度の粉体の場合には、エポキシ樹脂粘度は1080Pと低く、膜厚55 μ mで絶縁破壊強度39kV/mmが得られることを確認した。

【表1】

粉体名		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
		A	B	C	D
8 μ m以上の粒子の割合	mass%	52.1	52.1	55.2	55.2
"	球形度	0.78	0.78	0.78	0.78
"	球状化率	0.75	0.75	0.75	0.75
"	α アルミナ結晶分率	40	40	40	40
2 μ m未満の粒子の割合	mass%	10.3	5.4	5.3	10.2
"	球形度	0.70	0.70	0.70	0.70
"	球状化率	0.10	0.10	0.10	0.10
"	α アルミナ結晶分率	99	99	99	99
2 μ m未満の領域での最頻径	μ m	0.34	0.34	0.34	0.34
2~8 μ mの粒子の割合	mass%	37.6	42.5	39.5	34.6
分布の峰数		2	2	2	2
最大粒子径	μ m	62.2	62.2	62.2	62.2
平均粒子径	μ m	8.2	9.5	9.3	9.2
最頻径	μ m	14.27	14.27	14.27	14.27
球形度(平均)	-	0.79	0.78	0.78	0.77
球状化率(平均)	-	0.69	0.68	0.72	0.68
α アルミナ結晶分率	mass%	43	44	41	46
シート膜厚	μ m	47	48	44	53
絶縁破壊強度	kV/mm	45	39	41	78
エポキシ樹脂粘度	P	>5000	>5000	>5000	>5000

【表2】

粉体名			比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
			E	F	G	H
8 μ m以上の粒子の	割合	mass%	42.9	42.9	49.0	49.0
"	球形度	-	0.78	0.78	0.78	0.78
"	球状化率	-	0.75	0.75	0.75	0.75
"	α アルミナ結晶分率	mass%	40	40	40	40
2 μ m未満の粒子の	割合	mass%	20.2	10.5	20.1	0.6
"	球形度	-	0.70	0.70	0.70	0.95
"	球状化率	-	0.10	0.10	0.10	0.90
"	α アルミナ結晶分率	mass%	99	99	99	-
2 μ m未満の領域での最頻径		μ m	0.34	0.34	0.34	-
2~8 μ mの粒子の割合		mass%	36.9	46.6	30.9	50.4
分布の峰数			2	2	2	1
最大粒子径		μ m	62.2	62.2	62.2	62.2
平均粒子径		μ m	7.3	7.6	7.9	8.5
最頻径		μ m	14.27	14.27	14.27	14.27
球形度(平均)		-	0.78	0.81	0.76	0.81
球状化率(平均)		-	0.62	0.71	0.60	0.78
α アルミナ結晶分率		mass%	49	40	52	34
シート膜厚		μ m	50	50	49	47
絶縁破壊強度		kV/mm	28	29	30	32
エポキシ樹脂粘度		P	>5000	4330	>5000	3340

【表3】

粉体名			参考例1
			I
8 μ m以上の粒子の	割合	mass%	50.8
"	球形度	-	0.95
"	球状化率	-	0.95
"	α アルミナ結晶分率	mass%	38
2 μ m未満の粒子の	割合	mass%	33.0
"	球形度	-	0.95
"	球状化率	-	0.95
"	α アルミナ結晶分率	mass%	5
2 μ m未満の領域での最頻径		μ m	0.34
2~8 μ mの粒子の割合		mass%	16.2
分布の峰数			2
最大粒子径		μ m	88.0
平均粒子径		μ m	9.1
最頻径		μ m	20.17
球形度(平均)		-	0.95
球状化率(平均)		-	0.95
α アルミナ結晶分率		mass%	31
シート膜厚		μ m	55
絶縁破壊強度		kV/mm	39
エポキシ樹脂粘度		P	1020

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電気絶縁性と放熱性能が要求される電子部品の回路基板において、熱伝導性を有し放熱部材として用いることが可能で、且つ、薄膜状絶縁性組成物成膜時であっても高耐電圧特性を有する樹脂組成物を提供すること、及び、樹脂組成物に放熱性能を向上させ得るほど高充填でき、且つ、耐電圧特性の優れた薄膜状絶縁性樹脂組成物を調整することのできる、放熱部材用フィラーとして有用な熱伝導性無機質粉体を提供すること。

【解決手段】 無機質粉体が、最大粒子径が $63\mu\text{m}$ 未満で、且つ、平均粒子径が $4\sim 30\mu\text{m}$ の範囲にあり、最頻径が $2\sim 35\mu\text{m}$ の範囲にあり、頻度粒度分布において少なくとも $0.2\sim 2\mu\text{m}$ と $2\sim 63\mu\text{m}$ の粒度域にそれぞれ極大径を持つ多峰性を有する熱伝導性無機質粉体であること、及び、それらを熱伝導性フィラーとして充填した樹脂組成物であること。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-003377
受付番号	50400027751
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成16年 1月 9日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年 1月 8日

特願 2 0 0 4 - 0 0 3 3 7 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 2 0 0 4]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区芝大門 1 丁目 1 3 番 9 号

氏 名

昭和電工株式会社